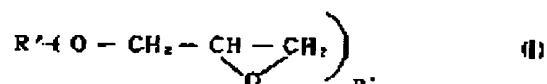
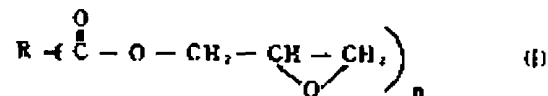


1. Name of invention (p.323 left column)

The thermoplastic polyester composition

2. Claim (p.323 left column)

The thermoplastic polyester composition comprising linear saturated polyester containing (A) at least one sort of glycidyl ester compound expressed following the general formula (I) and (B) at least one sort of glycidyl ether compound expressed following the general formula (II).



(wherein R and R' represents an hydrocarbon group having n valence and n' valence respectively and n and n' is an integer of 1 or more respectively.)

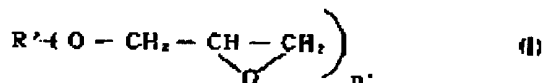
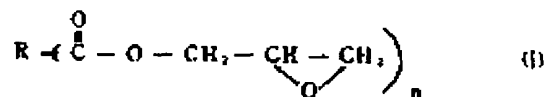
3. Detail explanation of the invention

P.323 left column L.20~ right column L.22 (Purpose of invention)

This invention relates to the thermoplastic polyester composition excellent in heat resistance and melt-flow ability.

P.324 upper left column L.18~P.324 lower left column L.10 (The effect of this invention)

Namely the present invention is to provide the thermoplastic polyester composition comprising linear saturated polyester containing (A) at least one sort of glycidyl ester compound expressed following the general formula (I) and (B) at least one sort of glycidyl ether compound expressed following the general formula (II).



(wherein R and R' represents an hydrocarbon group having n valence and n' valence respectively and n and n' is an integer of 1 or more respectively.)

Glycidyl ester compound and glycidyl ether compound are well-known additive to a thermoplastic polyester respectively and it is known that by carrying out each independent addition to a polyester effects to improvement of mold ability and mechanical property will be acquired. But when each independent addition is carried out, heat resistance of polyester is not improved mostly. However the present invention is defined by using two sorts of glycidyl ester compounds and glycidyl ether compound together. The base of present invention is put on the point, which

discovered that this acquires the new effect that the heat resistance of thermoplastic polyester improves in synergistic.

Although it is not clear about the reason for expression of the effect of this invention like this, it is thought that the epoxy groups of two sorts of additive acts on the carboxyl end group of thermoplastic polyester in multiplication and that it originates in 3-dimensional bridged polyester being formed.

P.325 upper right column L.4~P.326 upper right column L.18 (Explanation of glycidyl ester compound and glycidyl ether compound)

(A) the glycidyl ester compound for use in the invention is a compound expressed the general formula (I) above, and (B) the glycidyl ether compound for use in the invention is a compound expressed the general formula (II) above.

Inside of the general formula (I) above and the general formula (II) above, R and R' represent hydrocarbon groups having n valence and n' valence respectively and are aliphatic groups which the number of carbon is 20 or less, alicyclic groups such as cyclohexylene, aromatic groups such as phenylene and naphthylene.

n and n' are integers of 1 or more, but preferably 1-6 and most preferably 1-3.

Examples of (A) the glycidyl ester compound here are glycidyl benzoate, glycidyl p-toluate, glycidyl cyclohexanecarboxylate, glycidyl pelargonate, glycidyl stearate, glycidyl laurate, glycidyl palmitate, glycidyl behenate, glycidyl versatate, glycidyl oleate, glycidyl linolate, glylinolenate, glycidyl behenolenate, glycidyl stearolenate, diglycidyl terephthalate, diglycidyl isophthalate, diglycidyl phthalate, diglycidyl naphthalenedicarboxylate, diglycidyl dibenzoate, diglycidyl methylterephthalate, diglycidyl hexahydrophthalate, diglycidyl tetrahydrophthalate, diglycidyl cyclohexanedicarboxylate, diglycidyl adipate, diglycidyl succinate, diglycidyl sebacate, diglycidyl dodecanedicarboxylate, diglycidyl octadecanedicarboxylate, triglycidyl trimellitate, tetraglycidyl pyromellitate. One or more of these may be used herein.

Examples of (B) the glycidyl ether compound here are phenyl glycidyl ether, o-phenylphenyl glycidyl ether, 1,4-bis-(β , γ -epoxypropoxy)butane, 1,6-bis(β , γ -epoxypropoxy)hexane, 1,4-bis-(β , γ -epoxypropoxy)benzene, 1-(β , γ -epoxypropoxy)-2-ethoxyethane, 1-(β , γ -epoxypropoxy)-2-benzyloxyethane, 2,2-bis-(p-(β , γ -epoxypropoxy)phenyl)propane, bisglycidyl polyethers (oligomer between monomer and decamer) obtained through reaction of bisphenols such as 2,2-bis-(4-hydroxyphenyl)propane and 2,2-bis-(4-hydroxyphenyl) methane with epichlorohydrin. One or more of these may be used herein.

The amount of (A) the glycidyl ester compound to be in the thermoplastic polyester composition preferably falls between 0.01 and 5 parts by weight, more preferably between 0.05 and 3 parts by weight relative to 100 parts by weight of the thermoplastic polyester. The amount of (B) the glycidyl ether compound to be in the thermoplastic polyester composition preferably falls between 0.01 and 5 parts by weight, more preferably between 0.05 and 3 parts by weight relative to 100 parts by weight of the thermoplastic polyester. Namely, the total amount of (A) the glycidyl ester compound and (B) the glycidyl ether compound in the thermoplastic polyester composition preferably falls between 0.02 and 10 parts by

weight. Since there is a tendency for gelling of polymer to take place, at the time of blending or molding, if the these amount is larger 10 parts by weight, and the improvement effect of heat resistance sufficient will not be acquired, if smaller than 0.02 parts by weight, it is not desirable.

P.326 lower right column L.13~P.328 end (Examples)

Hereafter, this invention is described by example.

In addition, in a case of the operation, the degree of relative viscosity is the value that measured 0.5% of polymer solution at 25 degrees C by using o-chlorophenol as a solvent. Number of part in examples shows part by weight.

Example 1

The dry blend of the various glycidyl ester compounds of quantity and the various glycidyl ether compounds of quantity which were shown in the table 1 to 100 parts of polybutyleneterephthalate having an relative viscosity of 1.45 was carried out, followed by melt mixing and pelletizing was carried out using the extruder which has the screw of 40mm ϕ at 250 °C.

Next, by using the injection molding machine of the screw-in-line type which has the 10-oz injection capability set at 250 °C, the test piece of an ASTM No. 1 dumbbell was molded at the molding temperature at 80 °C. Under the present circumstances, the injection pressure (minimum injection pressure) for obtaining the molding materials used as a flow ability was measured.

Next, the obtained molded material was put into the hot wind drier which carried out temperature control to 180 degrees C, and the test piece of an examination was taken out in scheduled time, and it was tested for the tensile properties according to the ASTM D638 method, and examined, processing time until intensity becomes 50% (50% rate of on-the-strength maintenance) to initial tensile strength was found, and the valuation of heat-resistance was performed. These results are shown in the table 1.

No.		(A)Glycidyl ester compound	Content (Parts)		(B)Glycidyl ether compound	Content(Parts)	Heat Resistance	Melt Flow Ability
		glycidyl versatate	diglycidyl hexahydrophthalate	diglycidyl octadecanedicarboxylate	phenyl glycidyl ether	2,2-bis-[p-(β , γ -epoxypropoxy) phenyl]propane	50% of on-the-strength maintenance	Minimum Injection Pressure(kg/cm ² -G)
Example	1	1.0	-	-	1.0	-	11.0	16
	2	1.0	-	-	-	1.0	12.0	17
	3	-	1.0	-	1.0	-	18.0	25
	4	-	1.0	-	-	1.0	21.0	26
	5	-	-	1.0	1.0	-	17.5	25
	6	-	-	1.0	-	1.0	20.0	25
	7	-	0.5	-	-	0.5	16.0	18
	8	-	2.0	-	-	2.0	22.0	28
	9	-	3.0	-	-	3.0	24.0	32
Comparative	10	-	-	-	-	-	4.0	15
Example	11*1)	-	-	-	-	-	6.0	32
	12	-	1.0	-	-	-	13.0	24
	13	-	-	-	-	1.0	9.0	16
	14	-	0.005	-	-	0.005	4.0	15
	15	-	6.0	-	-	6.0	-	-*2)

*1) High polymerization degree polybutyleneterephthalate having an relative viscosity of 1.56 was used.

*2) Gelation was occurred at pelletizing and it was impossible to extrude.

The composition (No.1-9) of this invention which came to carry out combined addition of a glycidyl ester compound and the glycidyl ether compound to a polybutyleneterephthalate had the outstanding heat resistance and its minimum injection pressure was low and its melt mold ability was good so that clearly from the table 1.

On the other hand, when a polybutyleneterephthalate was only high polymerization degree (No.11), a only glycidyl ester compound independent is added (No.12) and a glycidyl ether compound independent was added (No.13), the improvement effect of heat-resistance is inadequate and melt molding ability was inadequate.

Example 2

100 parts of polybutyleneterephthalate having an relative viscosity of 1.43, 35 parts of glass fiber, 1.0 part of tetrahydrophthalic acid diglycidyl ester, 1.0 parts of 2,2-bis (p- (β , γ -epoxypropoxy) phenyl) propane), 0.2 parts of Irganox 1010(ciba-geigy) as anti-oxidizer and 0.2 parts of Hoechst wax OP powder (Hoechst) as release agent was mixed by V-Blender with a capacity of 50L. and melt-pelletizing was carried out at 250 degrees C using the extruder which has the screw of 65mm ϕ .

Subsequently, when injection molding and the valuation of heat-resistance were performed by the same method as a case of the example 1, minimum injection pressure was 38kg/cm²-G, and the days which become 50% of on-the-strength maintenance of the test piece are 150 days, and showed good heat resistance.

On the other hand, when the same measurement was performed using the composition which does not contain a glycidyl ester compound and a glycidyl ether compound, minimum injection pressure was 35 kg/cm²-G and the days which become 50% of on-the-strength maintenance of the test piece were 50 days.

Example 3

100 parts of polyethyleneterephthalate having an relative viscosity

of 1.31, 35 parts of glass fiber, 0.5 parts of hexahydrophthalic acid diglycidyl ester, 0.5 parts of phenyl glycidyl ether, 1.0 parts of talc was mixed by V-Blender with a capacity of 50L. and melt-pelletizing was carried out at 280 degrees C using the extruder which has the screw of 65mm ϕ .

Next, by using the injection molding machine of the screw-in-line type which has the 10-oz injection capability set at 280 °C, the test piece of an ASTM No. 1 dumbbell was molded at the molding temperature at 130 °C.

Subsequently, when measurement of physical properties were performed by the same method as a case of the example 1, minimum injection pressure was 16kg/cm²-G, and the days which become 50% of on-the-strength maintenance of the test piece are 160 days, and showed good heat resistance.

On the other hand, when the same measurement was performed using the composition which does not contain a glycidyl ester compound and a glycidyl ether compound, minimum injection pressure was 16 kg/cm²-G and the days which become 50% of on-the-strength maintenance of the test piece were 65 days.

12 公開特許公報 (A)

昭58—52344

5) Int. Cl.³
C 08 L 67/02
C 08 K 5/15
#(C 08 L 67/02
63/00)

識別記号

庁内整理番号

6505—4 J

7342—4 J

6958—4 J

43 公開 昭和58年(1983)3月28日

発明の数 1

審査請求 未請求

(全 6 頁)

54 熱可塑性ポリエステル組成物

①特 願 昭56—149618

②出 願 昭56(1981)9月24日

③発 明 者 山本善行

名古屋市港区大江町9番地の1

東レ株式会社名古屋事業場内

④発 明 者 米谷起一

⑤発 明 者 柳正名

名古屋市港区大江町9番地の1

東レ株式会社名古屋事業場内

名古屋市港区大江町9番地の1

東レ株式会社名古屋事業場内

⑥出 願 人 東レ株式会社

東京都中央区日本橋室町2丁目

2番地

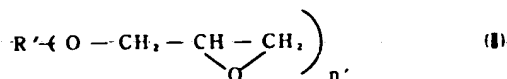
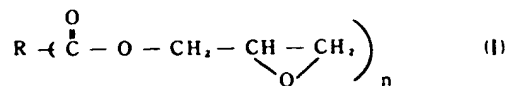
明 細 書

1. 発明の名称

熱可塑性ポリエステル組成物

2. 特許請求の範囲

線状飽和ポリエステルに(A)下記一般式(I)で表わされるグリシジルエステル化合物の少なくとも1種および(B)下記一般式(II)で表わされるグリシジルーテル化合物の少なくとも1種を含有せしめてなる熱可塑性ポリエステル組成物。



(式中R及びR'は、それぞれn価及びn'価の炭化水素基を、又n及びn'は1以上の整数を示す)

3. 発明の詳細な説明

本発明は、耐熱性および熔融流動性の優れた

熱可塑性ポリエステル組成物に関するものである。

ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレン

テレフタレートなどに代表される熱可塑性ポリ

エステルは、その優れた諸特性を利用して機械機構部品、電気部品、自動車部品などに使用されている。

一方、近年自動車エンジン内部部品や電熱器部品など高温下で使用される部品には、使用時の信頼性を高めるため、より耐熱性の高い材料が要求されている。

しかしながら熱可塑性ポリエステルは、優れた諸特性を有する反面、フェノール樹脂、アルキッド樹脂、不飽和ポリエステル樹脂などの熱硬化性樹脂やアルミニウム、亜鉛などの金属に比べて耐熱性が劣るため、高温下での使用が制限されているのが現状である。

この熱可塑性ポリエステルの耐熱性を向上する方法としては、熱可塑性ポリエステルにヒンダードフェノールなどの抗酸化剤を添加する方

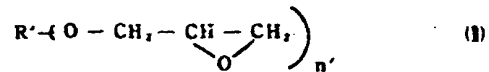
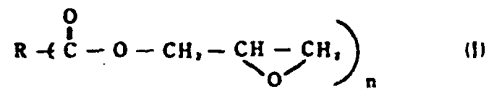
法、(例えば特開昭51-24695号公報)などが提案されているが、この方法によつても耐熱性の改善効果は小さく、フェノール化合物によりポリマが黄褐色に色するという問題がある。

また熱可塑性ポリエステル分子量を高める方法も、耐熱性を向上する手段として考えられるが、単に高分子量化するだけでは、耐熱性の改善効果が小さく、しかも成形時の熔融流動性が低下するため良好な成形品を得ることができない。

そこで本発明者らは、耐熱性が優れ、しかも良好な機械物性や熔融流動性を具備した熱可塑性ポリエステルを得るべく鋭意検討した結果、熱可塑性ポリエステルに対し特定のグリシジルエステル化合物とグリシジルーエーテル化合物を併用添加することにより、上記目的が効果的に達成できることを見出し本発明に到達した。

すなわち本発明は、線状飽和ポリエステルに(A)下記一般式(I)で表わされるグリシジルエステル化合物の少なくとも1種および(B)下記一般式

(II)で表わされるグリシジルーエーテル化合物の少なくとも1種を含有せしめてなる熱可塑性ポリエステル組成物を提供するものである。



(式中R及びR'は、それぞれn価及びn'価の炭化水素基を、又n及びn'は1以上の整数を示す)

グリシジルエステル化合物およびグリシジルーエーテル化合物はそれぞれ熱可塑性ポリエステルに対する添加剤として公知であり、ポリエステルに対し各々の単独添加することにより成形性改良効果や機械特性改良効果の得られることが知られているが、これらを単独添加する場合にはポリエステルの耐熱性はほとんど改良されない。しかるに本発明はグリシジルエステル化

合物とグリシジルーエーテル化合物の2種を併用することを特徴とするものであり、これにより熱可塑性ポリエステルの耐熱性が相乗的に向上するという新規効果が得られることを見出した点に発明の根拠を置くものである。

かかる本発明の効果の発現理由については明らかではないが、熱可塑性ポリエステルのカルボキシ末端に2種の添加剤のエポキシ基が相乗的に作用して、三次元的な架橋ポリエステルが形成されることに起因するものと考えられる。

本発明で使用する熱可塑性ポリエステルは実質的にテレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、イソフタル酸などから選ばれた少なくとも1種の酸成分と、エチレングリコール、プロピレングリコール、ブチレングリコール、ヘキシレングリコールあるいはポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコールなどのポリアルキレングリコールなどから選ばれた少なくとも1種のジオール成分との重縮合によつて得られるものであり、具体的にはポリエチレ

ンテレフタレート(PET)、ポリプロピレンテレフタレート(PPT)、ポリブチレンテレフタレート(PBT)、ポリヘキシレンテレフタレート(PHT)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリブチレンナフタレート(PBN)、ポリシクロヘキサ-1,4-ジメタロールテレフタレートなどのほか、ポリエチレンイソフタレート・テレフタレート(PET/I)、ポリブチレンテレフタレート・イソフタレート(PBT/I)などのような共重合ポリエステルなどを挙げることができる。なおこれらのポリエステルにはさらに30モル%以内で他の第3成分、たとえば、アジピン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸、ヘキサデカンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸、ダイマー酸、フタル酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、スルホイソフタル酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、シクロヘキサジカルボン酸、ビスフェノールAのエチレンオキサイド付加物、シクロヘキサンジメタノール、シクロヘキサジオール、ネオ

ペンタグリコール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサジオールなどを共重合させることができる。またこれらの熱可塑性ポリエステルを2種以上混合してなるブレンドであっても、本発明に適用することができる。

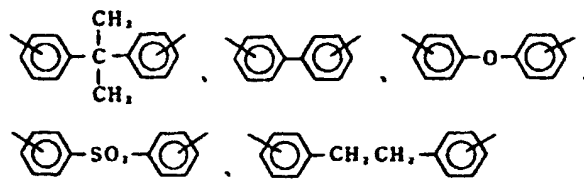
なお使用する熱可塑性ポリエステルは、オルトクロルフェノールの0.5%ポリマ溶液を25℃で測定した相対粘度が1.2~1.8の範囲にあり、そのカルボキシ末端基量が20~80当量/10⁶gのものが適当である。

さらには上記熱可塑性ポリエステルは、他の熱可塑性樹脂（例えばポリエチレン、ポリプロピレン、アクリル樹脂、ABS樹脂、MBS樹脂、フッ素樹脂、ポリアミド、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシドなど）、熱硬化性樹脂（例えばフェノール樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、シリコーン樹脂など）および軟質熱可塑性樹脂（例えばエチレン/酢ビ共重合体、エチレン-グリシジルメタクリレート共重合体、

ポリエステルエラストマー、エチレン/プロピレンターポリマーなど）などを少割合で含有することもできる。

本発明において用いられる(A)グリシジルエステル化合物とは、前記一般式(I)で表わされる化合物であり、また(B)グリシジルエーテル化合物とは、前記一般式(II)で表わされる化合物である。

前記一般式(I)及び(II)において、R、R'はそれぞれn価及びn'価の炭化水素基であり、炭素数20以下の脂肪族基、シクロヘキシレンなどの脂環族基、フェニレン、ナフチレン、



などの芳香族基を含有するものである。

n及びn'は1以上の整数であるが、1~6の数、特に1~3が好ましい。

ここで(A)グリシジルエステル化合物の具体例

としては、安息香酸グリシジルエステル、ポートルイル酸グリシジルエステル、シクロヘキサンカルボン酸グリシジルエステル、ペラルゴン酸グリシジルエステル、ステアリン酸グリシジルエステル、ラウリン酸グリシジルエステル、パルミチン酸グリシジルエステル、ペヘン酸グリシジルエステル、パーサチオフク酸グリシジルエステル、オレイン酸グリシジルエステル、リノール酸グリシジルエステル、リノレン酸グリシジルエステル、ペヘノール酸グリシジルエステル、ステアロール酸グリシジルエステル、テレフタル酸ジグリシジルエステル、イソフタル酸ジグリシジルエステル、フタル酸ジグリシジルエステル、ナフタレシジカルボン酸ジグリシジルエステル、ピ安息香酸ジグリシジルエステル、メチルテレフタル酸ジグリシジルエステル、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル、シクロヘキサジカルボン酸ジグリシジルエステル、アジピン酸ジグリシジルエステル、

コハク酸ジグリシジルエステル、セバシン酸ジグリシジルエステル、ドデカンジオン酸ジグリシジルエステル、オクタデカンジカルボン酸ジグリシジルエステル、トリメリット酸トリグリシジルエステル、ピロメリット酸テトラグリシジルエステルなどを挙げられ、これらは1種又は2種以上を用いることができる。

また(B)グリシジルエーテル化合物の具体例としては、フェニルグリシジルエーテル、オーフェニルフェニルグリシジルエーテル、1,4-ビス(β,γ-エポキシプロポキシ)ブタン、1,6-ビス(β,γ-エポキシプロポキシ)ヘキサン、1,4-ビス(β,γ-エポキシプロポキシ)ベンゼン、1-(β,γ-エポキシプロポキシ)-2-エトキシエタン、1-(β,γ-エポキシプロポキシ)-2-ベンジルオキシエタン、2,2-ビス[p-(β,γ-エポキシプロポキシ)フェニル]プロパンおよび2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンや2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)メタンなどのビスフ

エノールとエピクロロヒドリンの反応で得られるビスグリシジルポリエーテル(1~10量体のオリゴマ)などが挙げられ、これらも1種又は2種以上を用いることができる。

(A)グリシジルエステル化合物の添加量は、熱可塑性ポリエステル100重量部に対して0.01~5重量部、好ましくは0.05~3重量部の範囲が、また(B)グリシジルエーテル化合物の添加量は、熱可塑性ポリエステル100重量部に対して0.01~5重量部、好ましくは0.05~3重量部の範囲が適当である。したがって(A)グリシジルエステル化合物と(B)グリシジルエーテル化合物の添加量の総量は、熱可塑性ポリエステル100重量部に対して0.02~10重量部が適当であり、これが10重量部を超えると配合時に成形時にポリマのゲル化が起こる傾向があり、また0.02重量部以下では十分な耐熱性改良効果が得られないため好ましくない。

本発明組成物の耐熱性は、安定剤の添加によりさらに向上する。これらの安定剤としては

の添加量は通常熱可塑性ポリエステル100重量部に対し、5~70重量部の範囲である。さらにガラスビーズ、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、酸化チタン、硫酸バリウム、酸化カルシウム、酸化アルミニウムなどの充填剤を同様に加えることもできる。

また本発明組成物の成形性向上のため、シリコーンオイル、モンタン酸ワックス(エステル、ハーフエステル、塩)、ステアリン酸エステル、エチレンビスステアリルアミドなどの滑剤を配合することができ、これらの添加量は通常熱可塑性ポリエステル100重量部に対し、0.05~5.0重量部である。

その他本発明組成物に対し、デカブロムジフエニルエーテル、臭素化ポリカーボネートなどの難燃剤、染料、顔料、核剤、可塑剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、発泡剤、増粘剤など公知の添加物を加えることができる。

本発明組成物の製造方法は特に限定されるものではないが好ましくは熱可塑性ポリエステル

ン酸、亜リン酸、次亜リン酸、ホスホン酸、ホスフィン酸などのリン化合物またはこれらの金属塩化合物、エステル化合物などの誘導体(例えばフェニルホスホン酸、フェニルホスフィン酸、ジフェニルホスフィン酸、ポリホスホネート、ジアルキルペンタエリスリトールジホスファイト、ジアルキルビスフェノールAジホスファイト)、ヒンダードフェノール化合物、チオエーテル系、ジチオ酸塩系、メルカプトベンゼイミダゾール系、チオカルバニリド系、チオジプロピオン酸エステル系などのイオンを含む化合物およびスズマレート、ジブチルスズモノオキシドなどの有機スズ系化合物を用いることができる。これらの安定剤の添加量は熱可塑性ポリエステル100重量部に対し、0.01~2重量部である。

本発明組成物の熱変形温度向上、剛性向上のため、ガラス繊維、アスベスト、メタケイ酸カルシウム、チタン酸カリ、セラミックファイバーなどの繊維物質を加えることができ、これら

の融点以上において、熱可塑性ポリエステル、グリシジルエステル化合物、グリシジルエーテル化合物および他の所望の添加剤を押出機を用いて均一に熔融混練する方法があげられる。

得られた組成物は、通常公知の射出成形、押出成形などの任意の方法で成形できる。

本発明の組成物から得られた成形品は、優れた耐熱性と熔融成形性、有しており、電気・電子部品、自動車部品、精密機器部品等の種々の用途に使用することができるが、なかでもとくにその耐熱性を生かした自動車エンジンルーム内部部品、電熱器部品に対して有用である。

以下実施例によつて本発明を詳述する。

なお、実施例において、相対粘度とは、オルトクロルフエノールを溶媒として、0.5%のポリマー溶液を25℃で測定した値である。実施例中の部数は重量部数を示す。

実施例1

相対粘度1.45のポリブチレンテレフタレート100部に対して、第1表に示した量の各種

グリシジルエステル化合物および各種グリシジルエーテル化合物をドライブレンドし、250℃に設定した40mmφのスクリューを有する押出機を使用して熔融混合ペレタイズした。

次に得られたペレットから250℃に設定した10オンスの射出能力を有するスクリューインライントイプの射出成形機を用いて、ASTM 1号ダンベル試験片を金型温度80℃で成形した。この流動性の尺度となる成形品を得るための射出圧力（射出下限圧）を測定した。

次に得られた成形品を180℃に温度調節した熱風乾燥器に入れ、定時的に試験片を取り出し、ASTM D638法に従って引張試験を行ない、初期引張強さに対して強度が50%（強度保持率50%）になるまでの処理時間を求め、耐熱性の評価を行なった。これらの結果を第1表に示す。

第 1 表

No		Ⅳ)グリシジルエステル化合物 添加量 (部)			Ⅲ)グリシジルエーテル化合物 添加量 (部)		耐 熱 性	熔融流動性
		パーサチン酸モノグリシジルエステル	ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル	オクタデカンジカルボン酸ジグリシジルエステル	フェニルグリシジルエーテル	2,2-ビス(p-(β,γ-エポキシプロピル)フェニル)プロパン		
実 例	1	1.0	—	—	1.0	—	11.0	1.6
	2	1.0	—	—	—	1.0	12.0	1.7
	3	—	1.0	—	1.0	—	18.0	2.5
	4	—	1.0	—	—	1.0	21.0	2.6
	5	—	—	1.0	1.0	—	17.5	2.5
	6	—	—	1.0	—	1.0	20.0	2.5
	7	—	0.5	—	—	0.5	16.0	1.8
	8	—	2.0	—	—	2.0	22.0	2.8
	9	—	3.0	—	—	3.0	24.0	3.2
比 較 例	10	—	—	—	—	—	4.0	1.5
	11 ^{*1)}	—	—	—	—	—	6.0	3.2
	12	—	1.0	—	—	—	13.0	2.4
	13	—	—	—	—	1.0	9.0	1.6
	14	—	0.005	—	—	0.005	4.0	1.5
	15	—	6.0	—	—	6.0	—	— ^{*2)}

*1) 相対粘度1.56の高重合度ポリブチレンテレフタレートを使用。

*2) ペレット製造時ゲル化し、押出不能。

第1表から明らかなように、ポリブチレンテレフタレートに対しグリシジルエステル化合物及びグリシジルエーテル化合物を併用添加してなる本発明の組成物(No 1~9)は、優れた耐熱性を有すると共に、射出下限圧が低く熔融成形性が良好である。

これに対し、ポリブチレンテレフタレートを単に高重合度化する場合(No 11)およびグリシジルエステル化合物単独(No 12)、グリシジルエーテル化合物単独(No 13)を添加した場合は、耐熱性の向上効果が不十分なばかりか良好な熔融成形性を発揮しない。

実施例2

相対粘度1.43のポリブチレンテレフタレート100部、ガラス繊維35部、テトラヒドロフタル酸ジグリシジルエステル10部、2,2-ビス(4-(β , γ -エポキシプロポキシ)フェニル)プロパン10部、及び抗酸化剤としてイルガノックス1010(チバ・ガイギー社製)0.1部、成形剤としてヘキストワックス-OPパウ

のスクリューを有する押出機を使用し、280℃で熔融ペレタイズした。このペレットを280℃に設定した10オンスの射出能力を有するスクリューインラインタイプの射出成形機を用いて、ASTM1号ダンベル試験片を金型温度130℃で成形した。

得られた成形品を実施例1に示した方法で物性測定を行なったところ、成形時の射出下限圧は1.9 kg/cm²であり、試験片の強度保持率50%になる日数は160日で良好な耐熱性を示した。

一方、グリシジルエステル化合物、グリシジルエーテル化合物を添加しない組成物で同様な測定を行なったところ、射出下限圧は1.6 kg/cm²、強度保持率50%になる日数は65日であった。

ダー(ヘキスト社製)0.2部を容積50gのV-ブレンダーで混合し、6.5mmφのスクリューを有する押出機を使用し250℃で熔融ペレタイズした。

次いで実施例1と同様の方法で射出成形および耐熱性の評価を行なったところ、成形時の射出下限圧は3.8 kg/cm²であり、試験片の強度保持率50%になる日数は150日で良好な耐熱性を示した。

一方、グリシジルエステル化合物、グリシジルエーテル化合物を添加しない組成物で、同様の測定を行なったところ、射出下限圧は3.5 kg/cm²、強度保持率50%になる日数は50日であった。

実施例3

相対粘度1.31のポリエチレンテレフタレート100部、ガラス繊維35部、ヘキサヒドロフタル酸ジグリシジルエステル0.5部、フェニルグリシジルエーテル0.5部、タルク10部を容積50gのV-ブレンダーで混合し、6.5mm